

基于机器学习和器件模拟对Cu(In, Ga)Se₂电池中Ga含量梯度的优化分析

刘武 朱成皖 李昊天 赵谡玲 乔泊 徐征 宋丹丹

Optimization of Ga content gradient in Cu(In,Ga)Se₂ solar cells through machine learning and device simulation

Liu Wu Zhu Cheng-Wan Li Hao-Tian Zhao Su-Ling Qiao Bo Xu Zheng Song Dan-Dan

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 70, 238802 (2021) DOI: 10.7498/aps.70.20211234

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.70.20211234>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

基于机器学习和器件模拟对 $\text{Cu}(\text{In,Ga})\text{Se}_2$ 电池中 Ga 含量梯度的优化分析*

刘武^{1)2)#} 朱成皖^{1)2)#} 李昊天¹⁾²⁾ 赵谖玲¹⁾²⁾
乔泊¹⁾²⁾ 徐征¹⁾²⁾ 宋丹丹^{1)2)†}

1) (北京交通大学, 发光与光信息技术教育部重点实验室, 北京 100044)

2) (北京交通大学, 光电子技术研究所, 北京 100044)

(2021 年 7 月 1 日收到; 2021 年 7 月 31 日收到修改稿)

$\text{Cu}(\text{In,Ga})\text{Se}_2$ (CIGS) 太阳能电池是一种高效薄膜太阳能电池, Ga 含量 ($\text{Ga}/(\text{Ga}+\text{In})$, GGI) 梯度调控是在不损失短路电流情况下, 获得高开路电压的一种有效方法. 本文基于对薄膜电池效率极限的对比分析, 首先评估了 CIGS 电池性能提升的优化空间和策略. 进而, 通过机器学习与电池模拟分析相结合, 研究了不同类别的“V”型 GGI 梯度对电池性能的影响, 优化了“V”型双梯度的分布, 获得了高于 26% 的模拟效率, 并探究了其内部载流子作用机理. 本文的研究提供了获得高效率 CIGS 电池“V”型 GGI 梯度的优化方案, 为实验优化提供了指导.

关键词: $\text{Cu}(\text{In,Ga})\text{Se}_2$ 太阳能电池, Ga 梯度, 效率极限, 机器学习, 器件模拟

PACS: 88.40.jn, 88.40.hj, 78.20.Bh, 72.80.Cw

DOI: 10.7498/aps.70.20211234

1 引言

高效太阳能电池技术是实现碳中和目标的一项重要技术, 尤其是高效薄膜太阳能电池, 可以实现光伏建筑一体化, 是缓解能源危机、实现碳中和目标的一项高效太阳能电池技术. 目前, $\text{Cu}(\text{In,Ga})\text{Se}_2$ (CIGS)、卤素钙钛矿 (halide perovskite) 薄膜太阳能电池都取得了 23% 以上的转换效率, 与晶硅太阳能电池效率相当. 其中, CIGS 薄膜太阳能电池因为优异的材料稳定性和较成熟的制备工艺, 已逐步走向产业化. 然而, 相比钙钛矿电池 (最高效率 25.5%), CIGS 电池的效率相对较低 (最高值为 23.35%^[1]), 其器件性能仍有着很大的

提升空间.

为了获得高效率 CIGS 电池, 有效的技术方法包括: 1) “V”型 Ga 梯度, 可以在不损失光电流的情况下提升开路电压; 2) 碱金属后处理 (PDT) 钝化缺陷; 3) 无镉缓冲层减少界面能级失配及 CdS 电子传输层的光吸收等. 其中, Solar Frontier 公司利用 Ga 梯度调控和无镉双缓冲层的方法获得了 23.35% 的记录效率. Ga 梯度调控可以有效调控 CIGS 带隙在层中的纵向分布; 调节 $\text{Ga}/(\text{Ga}+\text{In})$ (GGI) 占比可以调节 CIGS 的带隙范围 (1.01—1.68 eV)^[2]. 因而, 调节 GGI 及 Ga 梯度可以平衡电池的光吸收及开路电压输出, 是获得高效率器件性能的关键方法. 目前, 国内外的众多研究中重点研究了 Ga 含量对电池性能的影响, 给出了 GGI

* 国家重点研发计划 (批准号: 2018YFB1500200) 资助的课题.

同等贡献作者.

† 通信作者. E-mail: ddsong@bjtu.edu.cn

最优占比为 0.30—0.33^[3,4]. 研究者对 GGI 梯度的影响也进行了一些研究, 在 GGI 平梯度、单梯度、以及“V”型双梯度三种分布种类中, “V”型 Ga 梯度分布被证明是一个有效提升器件性能的方法^[5-7]. 采用“V”型梯度分布, 高能量光子可以在薄膜表面宽带隙处被吸收, 而红外区域的光子在穿过薄膜表面以后在薄膜内部被吸收, 这种带隙的梯度分布最大程度地提高了光子的吸收效率.

虽然“V”型 Ga 梯度分布是一种获得高器件性能的有效方法, 然而, 受限于实验制备的复杂性及时间、材料和人力成本, 对其系统优化以筛选最佳 GGI 梯度分布比较困难. 器件模拟方法是快速筛选器件结构和材料的一种有效方法, 是太阳能电池研究中的一种有效手段, 但器件模拟存在一些困难, 例如, 如何合理设置材料物理参数以反映器件内的真实情况. 机器学习是近年来迅速发展的一种人工智能方法, 它基于神经网络、随机森林等算法对训练数据集进行学习、建立输入特征与输出性能之间的映射模型; 通过采用合适的训练数据集、优化算法参数, 可以对输入特征与输出之间的关联进行量化分析, 并对输出性能进行较为准确的预测. 近期机器学习在太阳能电池领域 (如有机太阳能电池、钙钛矿太阳能电池等) 被用来优化和筛选材料及器件结构^[8,9]. 我们前期利用机器学习方法, 基于报道的实验数据, 模拟 CIGS 组分 (包含 GGI 分布) 及器件制备参数和结构对器件光电转换性能的影响, 并对器件性能实现了较为准确的预测^[10]. 因而, 以实验数据作为训练集建立机器学习模型, 可以从实验经验中进行学习, 从而弥补器件模拟偏向于理想化模型的不足, 并且可以辅助筛选器件模拟中所采用的参数及评估模拟结果的合理性. 另一方面, 器件模拟可以从物理机理上辅助解释机器学习结果, 弥补机器学习可解释性差的问题. 因而, 结合机器学习和器件模拟的方法, 可以结合实验和理论经验, 并对结果进行交叉验证, 有望实现对 GGI 梯度的系统优化, 为实验提供指导.

因此, 本文采用机器学习与太阳能电池模拟软件 wxAMPS 模拟分析相结合, 建立了不同的“V”型 Ga 梯度的 CIGS 电池模型, 详细分析了 Ga 梯度对器件性能的影响及规律, 给出了不同位置 Ga 含量的最优数值, 优化分析了“V”型双梯度的分布, 探究了其内部载流子作用机理.

2 器件模拟与机器学习方法

2.1 CIGS 电池效率极限分析

为了明确器件模拟和机器学习优化的目标, 首先对比分析了单结太阳能电池的效率极限 (Shockley-Queisser(S-Q) 效率极限). 对比了晶硅 (c-Si)、CIGS、钙钛矿三种电池最新的实验值记录, 如表 1 所列. 为了分析这些参数与 SQ 效率极限值的差异, 计算了每种材料的两个特征参数, 包括: 1) 实验与理论极限短路电流比 J_{SC}/J_{SQ} , 它受限于电池活性层中光的耦合、吸收和俘获的程度, 以及载流子的收集效率; 2) 电压损失, $W_{OC} = E_g/q - V_{OC}$, 其中 E_g 为光学带隙, W_{OC} 主要与主体、表面和界面中载流子的复合程度有关. 理论极限值参考文献 [21, 22] 的计算结果. 从表 1 可以看出, c-Si 太阳能电池的短路电流与 S-Q 极限值已非常接近 (J_{SC}/J_{SQ} 达到 98% 左右), CIGS 电池的短路电流损失最大 (J_{SC}/J_{SQ} 为 90% 左右), 还有较大的提升空间. 同时, 高 J_{SC} 的 CIGS 电池对应的开路电压 V_{OC} 较低. 作为多晶薄膜太阳能电池, CIGS 的 V_{OC} 损失 W_{OC} (350 mV 以上) 明显高于最高效率的钙钛矿电池的 W_{OC} (小于 300 mV). 因而, 如何同时获得高的 V_{OC} 和 J_{SC} 是实现 CIGS 效率突破的关键. 从理论上分析, “V”型 GGI 梯度分布可能是实现这个目标的一个有效途径.

2.2 器件模拟模型设计及模拟参数

为了使器件模拟中采用的物理参数设置值更能反映真实器件情况, 首先模拟了当前最高效率 23.35% 的器件情况, 所使用的器件结构由衬底/Mo/CIGS/Zn(O, S, OH)_x/Zn_{0.8}Mg_{0.2}O/BZO 构成. 提取文献中的带隙梯度数据, 将文献中采用的厚度为 1 μm 的 CIGS 吸收层分为了 20 层 (等厚度), 通过设置 20 个分层中每层所对应的不同电子亲和势及禁带宽度, 模拟 Ga 梯度引起的带隙的变化, 结果如图 1 所示. 带隙与 Ga 梯度的关系为 $E_g = 1.01(1-x) + 1.65x - 0.15x(1-x)$, 其中 x 为 GGI 值^[23]. 通过 CIGS 吸收层中载流子密度、缺陷分布和复合机制的参数进行建模, 载流子浓度设为 $2 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ 、缺陷为高斯型缺陷分布. 表 2 给出了用于模拟 CIGS 电池的一些物理参数, 部分参数参考自文献 [24-26].

表 1 CIGS, c-Si, 钙钛矿三种电池的光伏特性参数、S-Q 极限值及差值分析. E_g , PCE/ $V_{OC}/J_{SC}/FF$, J_{SQ} , W_{OC} 分别代表材料的带隙、电池的转换效率/开路电压/短路电流密度/填充因子、SQ 极限计算的短路电流密度、 V_{OC} 损失
Table 1. Photovoltaic parameters, S-Q limit value and difference analysis of CIGS, c-Si, and perovskite solar cells. Here, E_g , PCE/ $V_{OC}/J_{SC}/FF$, J_{SQ} , W_{OC} respectively represent the band gap of the absorption material, the photoelectric conversion efficiency/open circuit voltage/short-circuit current density/fill factor of the solar cells, the short-circuit current density calculated by the SQ limit, and the V_{OC} loss.

Cell type	E_{th}/eV	PCE/%	V_{OC}/mV	$J_{SC}/(mA \cdot cm^{-2})$	FF/%	$J_{SQ}/(mA \cdot cm^{-2})$	W_{OC}/mV	$J_{SC}/J_{SQ}/%$	机构	参考文献
CIGS	1.088	23.35	734.0	39.58	80.4	44.0	354.0	89.95	SF	[1]
CIGS	1.130	22.92	746.0	38.50	79.7	43.0	384.0	89.53	SF	[11]
CIGS	1.143	22.60	741.0	37.80	80.6	42.3	402.0	89.36	ZSW	[12]
CIGS	1.110	22.30	722.0	39.40	78.2	43.7	388.0	90.16	SF	[13]
c-Si	1.120	26.70	738.0	42.65	84.9	43.3	382.0	98.50	Kaneka	[14]
c-Si	1.120	26.60	740.3	42.50	84.7	43.3	379.7	98.15	Kaneka	[14]
c-Si	1.120	26.30	744.0	42.30	83.8	43.3	376.0	97.69	Kaneka	[15]
c-Si	1.120	26.10	726.6	42.62	84.3	43.3	393.4	98.43	ISFH	[16]
钙钛矿	1.550	25.20	1180.5	25.14	84.8	27.1	369.5	92.77	KRICT	[17]
钙钛矿	1.480	24.64	1181.4	26.18	79.6	29.5	298.6	83.53	UNIST	[18]
钙钛矿	1.574	24.20	1194.8	24.16	84.0	26.2	379.2	92.21	KRICT	[19]
钙钛矿	1.536	23.70	1169.7	25.40	79.8	27.6	366.3	92.03	ISCAS	[20]

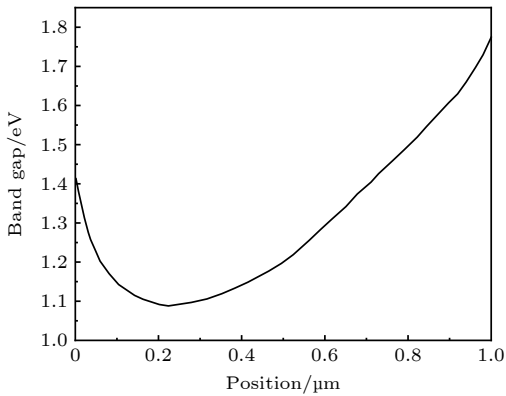


图 1 CIGS 吸收层带隙梯度变化

Fig. 1. Band gap gradient change of CIGS absorber layer.

表 2 器件模拟中使用的参数设置

Table 2. Parameter settings used in device simulation.

	B:ZnOZn(Mg, O)Zn(O, S, OH) _x			CIGS
Thickness/nm	500	50	8	1000
Permittivity/1	9	10	9	13.6
E_g/eV	3.3	3.6	3.6	1.06—1.66
Affinity/eV	4.4	4.2	4.2	3.89—4.49
$N_c/(10^{18} \text{ cm}^{-3})$	2.2	2.2	2.2	2.2
$N_v/(10^{19} \text{ cm}^{-3})$	1.8	1.8	1.8	1.8
$\mu_n/(\text{cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1})$	100	100	100	100
$\mu_p/(\text{cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1})$	25	25	25	25
$N_d/(10^{17} \text{ cm}^{-3})$	10	10	1	0
$N_a/(10^{16} \text{ cm}^{-3})$	0	0	0	2

图 2 给出了实验获得的和模拟得到的器件电流密度-电压 ($J-V$) 曲线, 可以发现二者符合度非常好, 说明模拟参数和模型设置较为合理. 因此, 本文采用这些参数对不同 GGI 梯度器件性能的影响进行模拟.

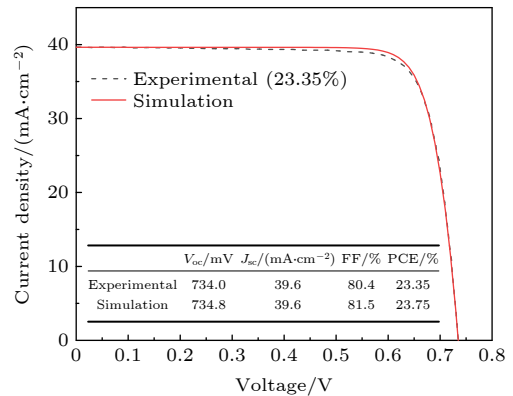


图 2 实验与模拟得到的 CIGS 太阳能电池 $J-V$ 特性

Fig. 2. $J-V$ characteristic of experimental data and simulation result for the CIGS solar cell.

2.3 机器学习算法和参数设置

从文献中收集实验数据作为机器学习的数据集, 包括 120 多篇最近发表的论文中的 300 多个数据点, 从中筛选信息记录全、 $PCE \geq 10\%$ 的数据点作为本文的数据集, 详细的数据集信息记录及数据清洗方法参看我们前期的论文^[10]. 使用 R 工具 (版本 3.6.2), 基于前期利用随机森林 (random forest)

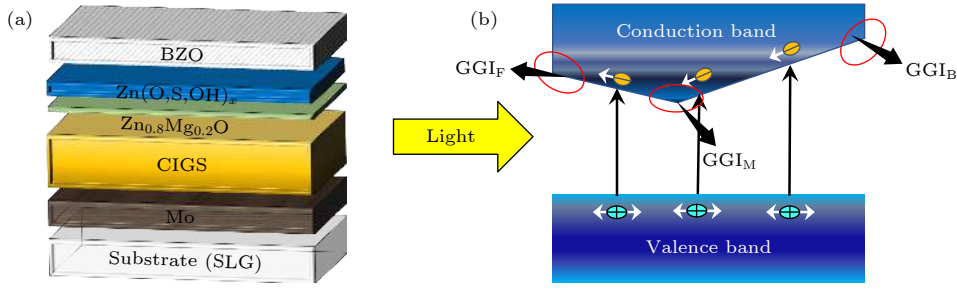


图 3 (a) CIGS 电池器件结构; (b) CIGS 层中 GGI 梯度示意图

Fig. 3. (a) Device structure of the CIGS solar cells; (b) schematic illustration of GGI gradient in CIGS.

算法建立的优化模型进行预测, 随机森林对器件 PCE 的预测均方根误差小于 1.5%. 为了反映 CIGS 层内的 GGI 浓度梯度, 对 GGI 使用了三个特征, 包括背面 Ga 含量 (靠近 Mo 接触, GGI_B)、位于 CIGS 层内的 Ga 含量 (最小的带隙位置, GGI_M) 和表面 Ga 含量 (靠近 n 型缓冲层接触, GGI_F), 如图 3(b) 所示. 机器学习模型中采用的其他指征包括 $[Cu]/([Ga]+[In])$ 比率、CIGS 吸收层厚度、缓冲层材料及厚度、CIGS 制备方法 (共蒸发或其他)、基板温度、基板或预沉积层是否含碱金属、是否碱金属后处理.

3 结果与讨论

3.1 机器学习预测结果分析

为了了解不同位置的 GGI 对光伏参数的特定贡献, 本文基于机器学习数据集计算了 GGI 与光伏特性参数之间的 Pearson 相关系数, 如表 3 所列. 可以看出, GGI_F , GGI_M , GGI_B 与 V_{OC} 整体呈正相关, 与 J_{SC} 整体呈负相关性, 亦即高的 GGI 可提升 V_{OC} 、但不利于获得高 J_{SC} . 另外还可以看出, GGI_M 与 J_{SC} 相关性更强, 因为在 V 型梯度中, 越低的 GGI_M 越利于获得高的 J_{SC} .

表 3 不同位置 GGI 与光伏参数之间的相关性

Table 3. Correlation between GGI value at different location and photovoltaic parameters.

	GGI_F	GGI_M	GGI_B
V_{OC}	0.38	0.35	0.34
J_{SC}	-0.26	-0.41	-0.12

图 4 给出了针对不同的 GGI_B , GGI_M 和 GGI_F 数据随机森林算法预测的器件效率. 随着 GGI_B 含

量的增大, 电池转换效率 PCE 值也随之增大. 这是因为, 高 GGI 区会加大背表面的禁带宽度、增强背电场强度, 而背表面电场的存在会促使光电子远离 CIGS/Mo 界面、减少界面复合. 但是, 过宽的背面带隙也会降低光吸收, 因此在 GGI_B 达到 0.8 (对应带隙值为 1.53 eV) 之后, PCE, V_{OC} , FF, J_{SC} 不再增加. 文献报道背表面 CIGS 带隙宽度不超过 1.5 eV 为宜 [27], 这与我们采用机器学习的预测值比较一致.

图 5 是 GGI 对 CIGS 电池转换效率影响的三维映射图, 可以看出, 电池转换效率的峰值范围集中在前表面 Ga 含量 $GGI_F = 0.45-0.50$. 有文献研究表明, CIGS 吸收层与缓冲层的导带失调值 (ΔE_C) 在合适的范围内, 可以抑制电池吸收区的复合, 有效提高电池的 V_{OC} [27]. 因此, 对于特定带隙的缓冲层材料, 必然会有一个最优的 GGI_F 范围构成最优的导带失调值. 相比于 CdS 缓冲层, Zn(Mg, O)/Zn(O, S, OH)_x 缓冲层拥有更高的带隙, 前表面 Ga 含量 GGI_F 能够接受的数值比 CdS 材料更大, 因而有可能获得更高的效率.

从图 5 可以发现, 在最优的 GGI_F 范围内对应了两个高效率峰值等高线, 一个在 GGI_F 与 GGI_M 梯度差 ΔGGI_{FM} 为 0.25—0.35 时; 一个在 GGI_F 与 GGI_M 梯度差 ΔGGI_{FM} 为 0—0.1 时. 这是因为当 GGI_F 与 GGI_M 相差大的时候, 较小的 GGI_M 提升了长波长光子的吸收, 此时, 较大的 GGI_B 带来的背电场使得器件性能的增益较明显, 即“深 V”型梯度更好. 而当 GGI_F 与 GGI_M 相差小的时候, 大的背梯度 GGI_B 带来的背电场对器件性能的增益不明显, 而过高的背梯度反而减少了长波段光的吸收, 因而采用小的 GGI_B 更利于获得更高的效率, 即“浅 V”型梯度更好.

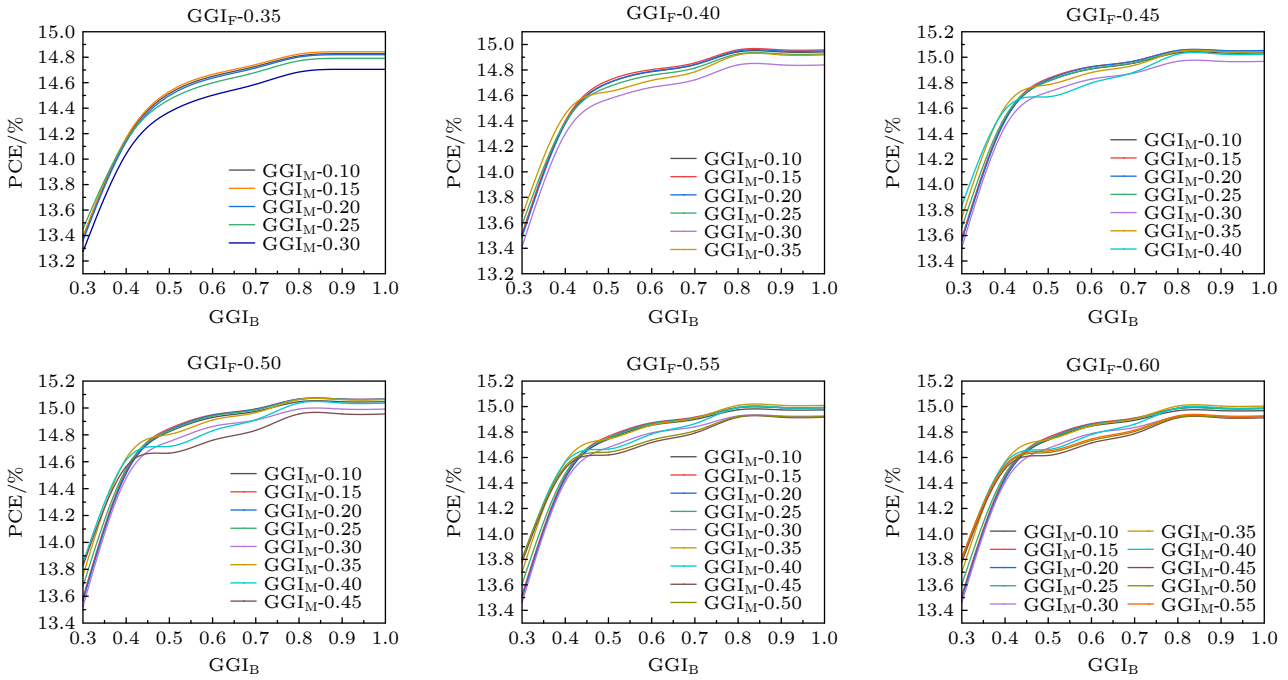


图 4 RF 算法预测的电池效率随 $GGI_F/GGI_M/GGI_B$ 变化的曲线

Fig. 4. Changes of predicted efficiency by RF algorithm with $GGI_F/GGI_M/GGI_B$.

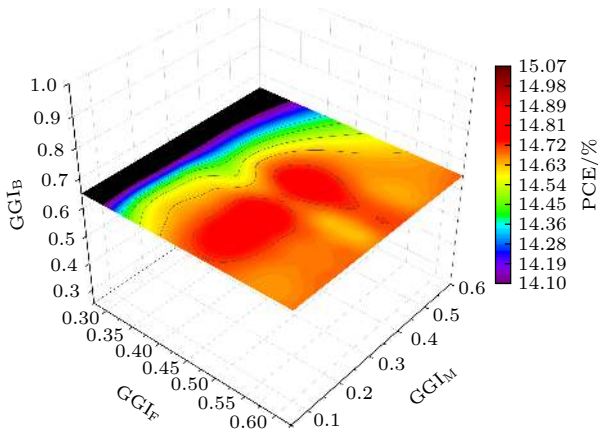


图 5 RF 算法预测的不同 GGI 值情况下的器件效率

Fig. 5. Device efficiency predicted by RF algorithm under different GGI values.

图 6 给出了机器学习筛选的 6 个优化 GGI 梯度 (模型 1—模型 6) 及预测的器件性能. 模型 0 为转换效率为 23.35%, 文献中采用的 GGI 梯度 (0.55—0.98) 及机器学习对该梯度预测的性能. 可以发现, 模型 0 的 V_{OC} , J_{SC} , FF, PCE 都不是所有模型中最高的数值, GGI 梯度模型 3—模型 6 所获得的效率也都比其高, 这说明文献 [1](效率 23.35%) 中所形成的 GGI 梯度并不是最优的梯度, 可以通过优化 GGI 的梯度分布进一步提高其转换效率. 另外需要说明的是, 机器学习预测效率整体偏低. 例如, 对于模型 0, 预测效率约为 14.97%, 低于实

验获得的 23.35% 的效率, 这是由于机器学习训练数据集中有很多较低效率的报道, 因而对高效率电池的预测值相对偏低. 为了模拟高效率电池性能, 进一步采用器件模拟方法, 因为器件模拟中的器件模型是较为理想情况下的器件, 更接近高效率器件的情况.

3.2 器件模拟结果与分析

考虑 CIGS 薄膜不同位置上的 Ga 含量变化, 设计了不同的 Ga 梯度变化的 CIGS 电池模型, 参考机器学习的预测结果, 器件模拟中 GGI_F 值的设置范围为 0.4—0.6, GGI_M 值的设置范围为 0.1—0.4. 为了避免其他非 Ga 梯度因素带来的影响, 需要保证总的 Ga 平均含量与基础器件一致, 这有利于对薄膜表面、内部和背面的 Ga 含量的差别带来的影响进行比较分析. 在此基础上考虑薄膜不同位置上的 GGI_B 变化并设计了 14 个不同的 Ga 梯度变化模型, 然后使用 wxAMPS 进行模拟仿真. 梯度范围如表 4 所列, 梯度曲线如图 7 所示. 模型 1—模型 6 是 $GGI_F = 0.4$ 情况下, GGI_M 依次增大, GGI_B 依次减小; 模型 7—模型 10 是 $GGI_F = 0.5$ 情况下, GGI_M 依次增大, GGI_B 依次减小; 模型 11—模型 14 是 $GGI_F = 0.6$ 情况下, GGI_M 依次增大, GGI_B 依次减小.

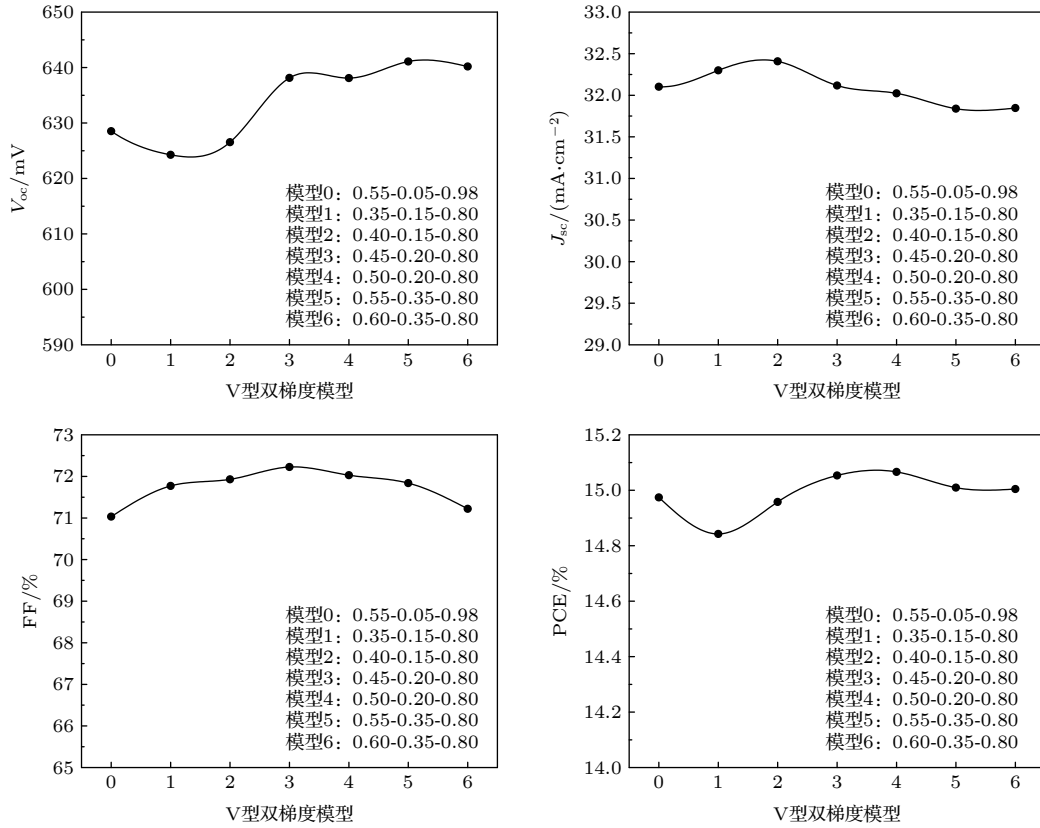


图 6 RF 算法预测的不同 GGI 梯度的器件性能. 其中, 0 代表实验效率为 23.35% 的电池所采用的 GGI 梯度, 模型 1—模型 6 为预测效率最高的 6 组器件的 GGI 梯度

Fig. 6. Predicted device performance of the CIGS solar cells based on different GGI gradients by RF algorithm. 0 represents for the GGI gradient used in the device with 23.35% experimental efficiency, while 1–6 are the GGI gradients of the devices with the highest predicted efficiency.

表 4 wxAMPS 器件模拟所用的 GGI 梯度模型
Table 4. Schemes of GGI gradient used for wxAMPS device simulation.

模型	1	2	3	4	5	6	7
GGI_F	0.40	0.40	0.40	0.40	0.40	0.40	0.50
GGI_M	0.10	0.15	0.20	0.25	0.30	0.35	0.10
GGI_B	0.84	0.77	0.71	0.65	0.58	0.52	0.80
模型	8	9	10	11	12	13	14
GGI_F	0.50	0.50	0.50	0.60	0.60	0.60	0.60
GGI_M	0.20	0.30	0.40	0.10	0.20	0.30	0.40
GGI_B	0.67	0.54	0.42	0.76	0.63	0.50	0.44

图 8 给出了 14 个不同梯度变化的“V”型梯度器件性能参数. 图 8(a) 为 CIGS 电池的 V_{OC} 参数图, 可以看出, 电池内部的 Ga 含量极小值 GGI_M 的大小在很大程度上影响着开路电压. 在不同的前表面 Ga 含量中 ($GGI_F = 0.4, 0.5, 0.6$), 随着 GGI_M 的增大 (模型 1—模型 6、模型 7—模型 10、模型 10—模型 14), 电池开路电压随之增加, 这归因于吸收层内部最小禁带宽度的增加. 但是随着 Ga 含

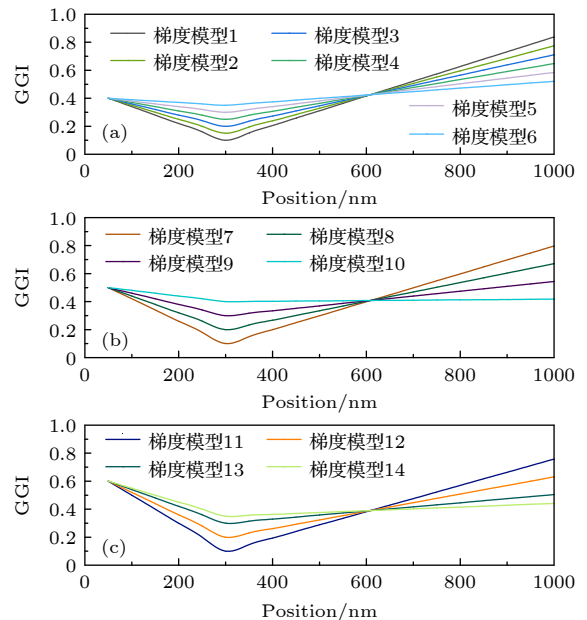


图 7 器件模拟采用的 14 种“V”型双梯度模型 (a) $GGI_F = 0.4$; (b) $GGI_F = 0.5$; (c) $GGI_F = 0.6$

Fig. 7. 14 types of “V”-shaped double GGI gradient schemes used in the device simulation: (a) $GGI_F = 0.4$; (b) $GGI_F = 0.5$; (c) $GGI_F = 0.6$.

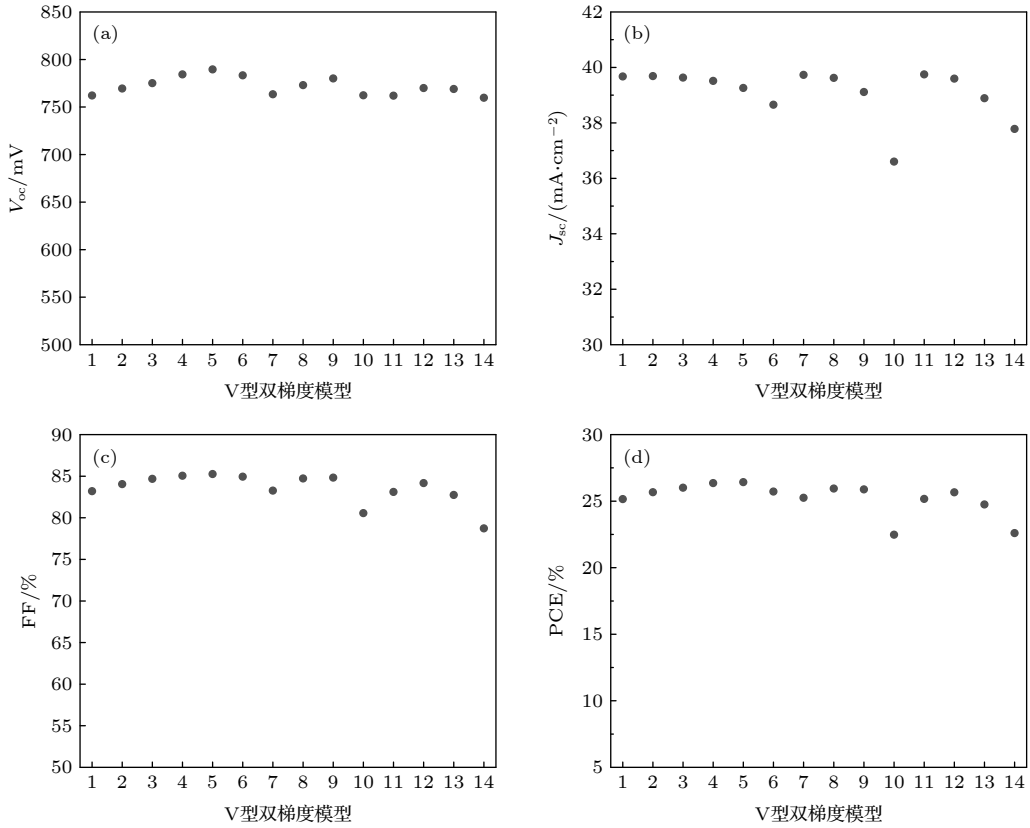


图 8 器件模拟得到的不同 GGI 梯度模型的器件性能

Fig. 8. Device performance of the CIGS solar cells based on different GGI gradient schemes obtained by device simulation.

量极小值 GGI_M 的进一步增大, 开路电压 V_{OC} 和填充因子 FF (图 8(c)) 出现下降. 图 8(b) 为 CIGS 电池的短路电流参数图, 当前表面 Ga 含量 GGI_F 确定后, 随着 GGI_M 的增大 (模型 1—模型 6、模型 7—模型 10、模型 10—模型 14), 电池的短路电流 J_{SC} 随之减小, 这是因为大的 GGI_M 增大了吸收层的最小禁带宽度, 使得吸收层在长波段的光谱响应下降. 因此, 对于每一个前表面 Ga 含量 GGI_F , 都将存在一个最优的转换效率 (如图 8(d) 所示), 它是平衡了 V_{OC} 带来的增益和 J_{SC} 的损失的结果.

为了深入探究器件内部载流子机理, 选取每个模型在前表面、内部、后表面的载流子复合速率值进行了对比分析, 如图 9 所示. 在前表面 Ga 含量 GGI_F 一定的情况下, 器件内部的载流子复合率随着 Ga 含量极小值 GGI_M 的增大而增加, 如图 9(b) 所示; 同时, 后表面 Ga 含量减小 (如表 4 和图 7 所示) 导致背电场强度减小 (如图 10 所示). 内部的载流子复合率的增加导致了载流子收集效率的降低, 同时 CIGS 背面电场的减小不利于抑制少数载流子在后表面的复合, 这使得短路电流 J_{SC} 下降.

图 8(d) 为 CIGS 电池的转换效率参数图, 相比于效率为 23.35% 的器件所采用的梯度, 本文所设立的 14 种模型梯度实现了更高 PCE, 最大值高于 26%. 这也说明“V”型 GGI 梯度的进一步优化

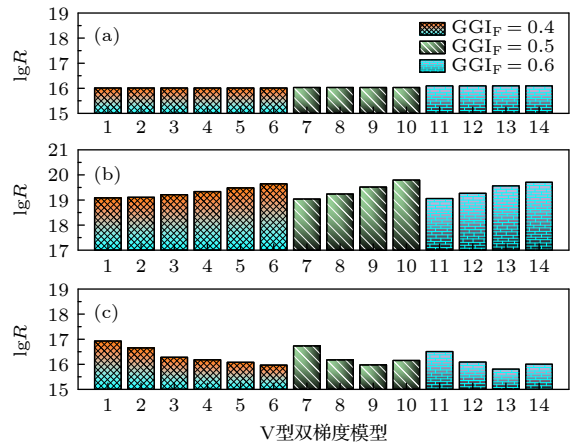


图 9 器件模拟得到的 CIGS 电池不同位置载流子复合速率 (a) 前表面; (b) 电池内部; (c) 后表面. R 为复合速率, 单位 $cm^{-3} \cdot s^{-1}$

Fig. 9. Carrier recombination rate at different positions of CIGS solar cells obtained by device simulation: (a) Front surface; (b) interior; (c) rear surface. Here, R is the recombination rate, which unit is $cm^{-3} \cdot s^{-1}$.

有望实现 CIGS 效率的进一步突破. 从实验技术的实现来说, 本文设计的多个模型的 GGI 值的变化范围相对效率为 23.35% 的器件所采用的更小, 因而实验技术上相对更容易实现. 因此, 这些研究结果可以为实验优化提供指导.

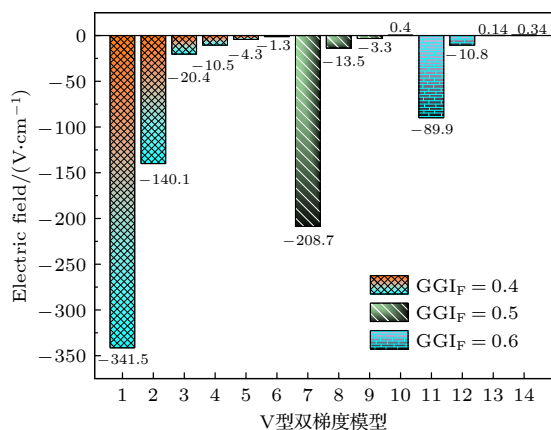


图 10 器件模拟得到的 CIGS 薄膜背电场强度

Fig. 10. Back electric field intensity of CIGS film obtained by device simulation.

4 结论

本文通过机器学习与器件模拟分析相结合, 分别基于实验和理论经验, 量化分析了不同位置 Ga 含量对器件性能的影响, 证明了 Ga 梯度优化的重要性, 并给出了获得高效率器件的 GGI 梯度参考值. 基于机器学习和器件模拟, 分别筛选了 6 种和 14 种 GGI 梯度, 机器学习预测的效率和器件模拟得到的效率优于目前最高效率采用的 GGI 梯度的预测效率和模拟效率. 因而, 进一步优化 GGI 梯度, 有望实现 CIGS 电池效率的突破, 本文的分析结果可为实验优化提供方向.

1) GGI_F , GGI_M , GGI_B 与 V_{OC} 整体呈正相关, 与 J_{SC} 整体呈负相关性, 高的 GGI 可提升 V_{OC} , 但不利于获得高 J_{SC} . GGI_M 与 J_{SC} 的相关性更强, 在 V 型梯度中, 越低的 GGI_M 越利于获得高的 J_{SC} ; 2) 背面 Ga 含量 GGI_B 的增大会增强背电场强度, 减少界面复合; 但过宽的背面带隙会提高背表面复合速度, 增加吸收损失. 机器学习筛选的最佳 Ga 含量背梯度 $GGI_B = 0.8$; 3) Ga 梯度的优化是实现效率突破的有效方法, 基于优化的 Ga 梯度, 器件模拟效率最大值高于 26%.

参考文献

- [1] Nakamura M, Yamaguchi K, Kimoto Y, Yasaki Y, Kato T, Sugimoto H 2019 *IEEE J. Photovoltaics* **9** 1863
- [2] Belghachi A, Limam N 2017 *Chin. J. Phys.* **55** 1127
- [3] Peace B, Claypoole J, Sun N, Dwyer D, Eisaman M D, Haldar P, Efstathiadis H 2016 *J. Alloys Compd.* **657** 873
- [4] Lim D, Kim M Y, Song W 2016 *Sci. Adv. Mater.* **8** 558
- [5] Jackson P, Hariskos D, Wuerz R, et al. 2015 *Phys. Status Solidi RRL* **9** 28
- [6] Aissani H, Helmaoui A, Moughli H 2017 *Int. J. Appl. Eng. Res.* **12** 227
- [7] Saadat M, Moradi M, Zahedifar M 2016 *Superlattices. Microstruct.* **92** 303
- [8] Majeed N, Saladina M, Krompiec M, Greedy S, Deibel C, MacKenzie R C I 2020 *Adv. Funct. Mater.* **30** 1907259
- [9] Buratti Y, Le Gia Q T, Dick J, Zhu Y, Hameiri Z 2020 *NPJ Comput. Mater.* **6** 1
- [10] Zhu C W, Liu W, Li Y Y, et al. 2021 *Sol. Energy* **228** 45
- [11] Kato T, Wu J L, Hirai Y, Sugimoto H, Bermudez V 2018 *IEEE J. Photovoltaics* **9** 325
- [12] Jackson P, Wuerz R, Hariskos D, Lotter E, Witte W, Powalla M 2016 *Phys. Status Solidi RRL* **10** 583
- [13] Tai K F, Kamada R, Yagioka T, Kato T, Sugimoto H 2017 *Jpn. J. Appl. Phys.* **56** 08MC03
- [14] Green M, Dunlop E, Hohl-Ebinger J, Yoshita M, Kopidakis N, Hao X 2021 *Prog. Photovoltaics Res. Appl.* **29** 3
- [15] Yoshikawa K, Kawasaki H, Yoshida W, Irie T, Konishi K, Nakano K, Uto T, Adachi D, Kanematsu M, Uzu H, Yamamoto K 2017 *Nat. Energy* **2** 1
- [16] Haase F, Hollemann C, Schäfer S, Merkle A, Rienäcker M, Krtigener J, Brendel R, Peibst R 2018 *Sol. Energy Mater. Sol. Cells* **186** 184
- [17] Yoo J J, Seo G, Chua M R, Park T G, Lu Y, Rotermund F, Kim Y K, Moon C S, Jeon N J, Correa-Baena J P, Bulović V, Shin S S, Bawendi M G, Seo J 2021 *Nature* **590** 587
- [18] Jeong M, Choi I W, Go E M, Cho Y, Kim M, Lee B, Jeong S, Jo Y, Choi H W, Lee J, Bae J H, Kwak S K, Kim D S, Yang C 2020 *Science* **369** 1615
- [19] Green M A, Dunlop E D, Levi D H, Hohl-Ebinger J, Yoshita M, Ho-Baillie A W Y 2019 *Prog. Photovoltaics Res. Appl.* **27** 565
- [20] Green M A, Hishikawa Y, Dunlop E D, Levi D H, Hohl-Ebinger J, Yoshita M, Ho-Baillie A W Y 2019 *Prog. Photovoltaics Res. Appl.* **27** 3
- [21] Polman A, Knight M, Garnett E C, Ehrler B, Sinke W C 2016 *Science* **352** aad4424
- [22] Nayak P K, Cahen D 2014 *Adv. Mater.* **26** 1622
- [23] Jackson P, Hariskos D, Lotter E, Paetel S, Wuerz R, Menner R, Wischmann W, Powalla M 2011 *Prog. Photovoltaics Res. Appl.* **19** 894
- [24] Liu Y, Li B, Lin S, Liu W, Adam J, Madsen M, Rubahn H G, Sun Y 2018 *J. Phys. Chem. Solids* **120** 190
- [25] Saadat M, Moradi M, Zahedifar M 2016 *J. Mater. Sci. - Mater. Electron.* **27** 1130
- [26] Ji S, Hayakawa T, Suyama N, Nakada K, Yamada A 2020 *Jpn. J. Appl. Phys.* **59** 041003
- [27] Liu F F, Sun Y, He Q 2014 *Acta Phys. Sin.* **63** 047201 (in Chinese) [刘芳芳, 孙云, 何青 2014 物理学报 **63** 047201]

Optimization of Ga content gradient in Cu(In,Ga)Se₂ solar cells through machine learning and device simulation*

Liu Wu^{1)2)#} Zhu Cheng-Wan^{1)2)#} Li Hao-Tian¹⁾²⁾ Zhao Su-Ling¹⁾²⁾
Qiao Bo¹⁾²⁾ Xu Zheng¹⁾²⁾ Song Dan-Dan^{1)2)†}

1) (*Key Laboratory of Luminescence and Optical Information, Ministry of Education, Beijing Jiaotong University, Beijing 100044, China*)

2) (*Institute of Optoelectronics Technology, Beijing Jiaotong University, Beijing 100044, China*)

(Received 1 July 2021; revised manuscript received 31 July 2021)

Abstract

Cu(In,Ga)Se₂ (CIGS) solar cell is a kind of highly efficient thin film solar cell, for which Ga ratio (Ga/(Ga+In), GGI) gradient engineering is an efficient approach to achieving high open circuit voltage under no short circuit current loss. In this work, we firstly evaluate the room and the strategies for improving the device performance of the CIGS solar cells based on the comparison among their theoretical efficiency limits. Then we investigate the different schemes of “V” type GGI gradient and their effects on device performance through machine learning and device simulation. Based on these studies, we optimize the scheme of “V” type GGI gradient and obtain a high efficiency of 26% from device simulation. The carrier kinetics for the effect of modifying GGI gradient on device performance are analyzed. This work provides an approach to optimizing the GGI gradient to obtain highly efficient CIGS solar cells, which is referable for experimental optimization.

Keywords: Cu(In,Ga)Se₂ solar cells, Ga gradient, efficiency limit, machine learning, device simulation

PACS: 88.40.jn, 88.40.hj, 78.20.Bh, 72.80.Cw

DOI: [10.7498/aps.70.20211234](https://doi.org/10.7498/aps.70.20211234)

* Project supported by the National Key R&D Program of China (Grant No. 2018YFB1500200).

These authors contributed equally.

† Corresponding author. E-mail: ddsong@bjtu.edu.cn